

# EUROPEAN PATENT OFFICE

## Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 2000030871  
PUBLICATION DATE : 28-01-00

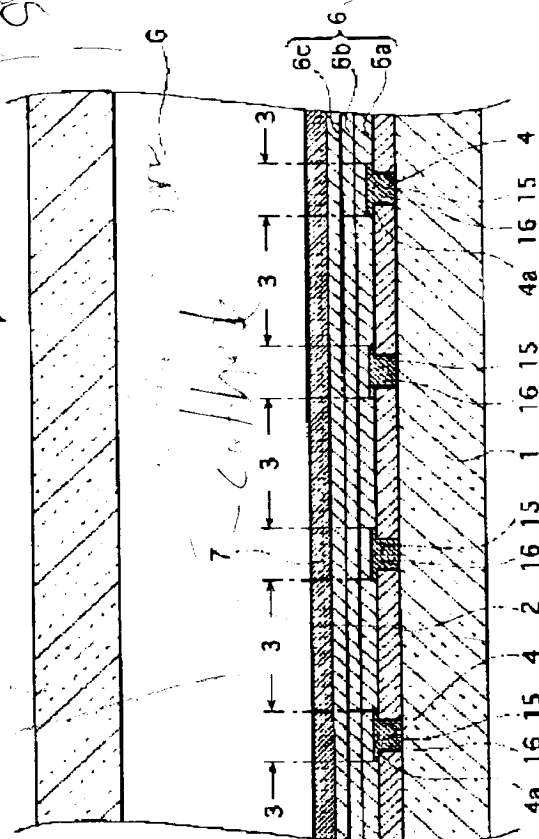
APPLICATION DATE : 08-07-98  
APPLICATION NUMBER : 10193315

APPLICANT : FUTABA CORP;

INVENTOR : OGAWA YUKIO;

INT.CL. : H05B 33/22 H05B 33/04 H05B 33/14

TITLE : ORGANIC EL ELEMENT



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To suppress the occurrence of a nonluminescence section in a luminescence area and to keep the luminescence area at the same state as the initial state over a long period.

SOLUTION: An anode 2 made of a transparent conductive film and having through holes 4 to form the pattern of a luminescence pattern 3 is provided on an element substrate 1 made of a glass substrate. Insulating layers 15 including water catching materials 16 are formed on the anode 2 to bury the through holes and cover the edge portions 4 a of the through holes 4. Organic layers 6 are laminated on the anode 2 and the insulating layers 15, and a cathode 7 made of a metal thin film is laminated on the organic layers 6. A seal substrate 8 is sealed to the outer peripheral edge portion of the element substrate 1 to seal the inert gas G by dry nitrogen in it. The insulating layers 15 are made of a polyimide film spin-coated and heat-treated with a polyimide solution mixed and dispersed with the water catching material 16 on the anode 2. The water catching material 16 is made of calcium oxide or barium oxide adsorbing and retaining moisture via the chemical reaction to water.

COPYRIGHT: (C)2000,JPO

DIALOG(R)File 352:Derwent WPI  
(c) 2002 Derwent Info Ltd. All rts. reserv.  
013015712      \*\*Image available\*\*

WPI Acc No: 2000-187563/200017

XRAM Acc No: C00-058623

XRPX Acc No: N00-139072

Organic electroluminescent display element - has insulating layer on  
anode that includes water absorbing material like calcium or barium oxide

Patent Assignee: FUTABA DENSHI KOGYO KK (FUTK )

Number of Countries: 001    Number of Patents: 001

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
<b>JP 2000030871</b>	A	20000128	JP 98193315	A	1998070	200017 B

Priority Applications (No Type Date): JP 98193315 A 19980708

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan Pg	Main IPC	Filing Notes
JP 2000030871 A			6 H05B-033/22	

Abstract (Basic): JP 2000030871 A

NOVELTY - The insulating layer (15) is formed on an anode (2) by spin coating and heating of polyimide solution blended with water absorption material. The water absorption material includes calcium oxide or barium oxide that adsorbs water component by chemical reaction. The edge (4a) and inner area of the penetrating pores (4) are covered by the insulating layer.

DETAILED DESCRIPTION - The anode consists of conductive film is formed on a glass substrate (1). The penetrating pores are formed in the anode to form the pattern of light emission area. An organic layer (6) containing light emitting layer is formed on the anode and the insulating layer. The cathode (7) consists of metal film is formed on the organic layer. The inert gas (G) like dry nitrogen is sealed between the sealing substrate (8) and the glass substrate.

USE - Organic electroluminescent display element.

ADVANTAGE - Reduces formation of non-light emitting portion in boundary of insulating layer and light emission area by adsorbing water component reliably. Maintains shape of light emission area for long time period. Prevents increase in drive voltage caused by increase of current density caused by reduction of light emission area. Reduces waste power consumption by reducing increase in drive voltage.

DESCRIPTION OF DRAWING(S) - The figure shows sectional view of organic EL element. (1) Glass substrate; (2) Anode; (4) Penetrating pores; (4a) Edge; (6) Organic layer; (7) Cathode; (8) Sealing substrate; (15) Insulating layer; (G) Inert gas. Dwg.1/2

JP 2000030871 A

NOVELTY - The insulating layer (15) is formed on an anode (2) by spin coating and heating of polyimide solution blended with water absorption material. The water absorption material includes calcium oxide or barium oxide that adsorbs water component by chemical reaction. The edge (4a) and inner area of the penetrating pores (4) are

covered by the insulating layer.

DETAILED DESCRIPTION - The anode consists of conductive film is formed on a glass substrate (1). The penetrating pores are formed in the anode to form the pattern of light emission area. An organic layer (6) containing light emitting layer is formed on the anode and the insulating layer. The cathode (7) consists of metal film is formed on the organic layer. The inert gas (G) like dry nitrogen is sealed between the sealing substrate (8) and the glass substrate.

USE - Organic electroluminescent display element.

ADVANTAGE - Reduces formation of non-light emitting portion in boundary of insulating layer and light emission area by adsorbing water component reliably. Maintains shape of light emission area for long time period. Prevents increase in drive voltage caused by increase of current density caused by reduction of light emission area. Reduces waste power consumption by reducing increase in drive voltage.

DESCRIPTION OF DRAWING(S) - The figure shows sectional view of organic EL element. (1) Glass substrate; (2) Anode; (4) Penetrating pores; (4a) Edge; (6) Organic layer; (7) Cathode; (8) Sealing substrate; (15) Insulating layer; (G) Inert gas.

Dwg.1/2

Title Terms: ORGANIC; ELECTROLUMINESCENT; DISPLAY; ELEMENT; INSULATE; LAYER ; ANODE; WATER; ABSORB; MATERIAL; CALCIUM; BARIUM; OXIDE

Derwent Class: A85; X26

International Patent Class (Main): H05B-033/22

International Patent Class (Additional): H05B-033/04; H05B-033/14

File Segment: CPI; EPI



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 素子基板と、発光エリアのパターンを形成するように透孔を有して前記素子基板の上に形成された導電膜からなる第1の電極と、前記透孔を埋めて該透孔のエッジ部分を覆うように前記第1の電極の上に形成された絶縁層と、前記第1の電極及び前記絶縁層の上に形成された発光層を含む有機層と、前記有機層の上に形成された導電膜からなる第2の電極と、内部がドライ雰囲気中に保たれた状態で前記素子基板の外周部分に封着される封止部材とを備えた有機EL素子において、前記絶縁層中に捕水材を含有したことを特徴とする有機EL素子。

【請求項2】 前記2つの電極の少なくとも一方が透明性を有する導電膜からなる請求項1記載の有機EL素子。

【請求項3】 前記絶縁層は、捕水材を混合・分散させたポリイミド溶液を熱処理したポリイミド膜からなる請求項1又は2記載の有機EL素子。

【請求項4】 前記捕水材は、酸化カルシウム又は酸化バリウムからなる請求項1～3いずれかに記載の有機EL素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、少なくとも一方が透明電極からなる一対の電極間に有機化合物材料の薄膜が積層された有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子と略称する）に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 有機EL素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜を陰極と陽極の間に挟んだ構造を有し、前記薄膜に正孔及び電子を注入して再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、この励起子が失活する際の光の放出（蛍光・燐光）を利用して表示を行う素子である。

【0003】 図2はこの種の一般的な有機EL素子の構成を示す側断面図である。図2に示す有機EL素子は、絶縁性及び透光性を有するガラス基板からなる素子基板1を基部としている。素子基板1の上には、透明導電膜による陽極2が形成されている。透明導電膜による陽極2は、発光エリア3のパターンを形成するように透孔4を有して素子基板1の上に形成される。

【0004】 透明導電膜からなる陽極2の透孔4内には、ポリイミド膜からなる絶縁層5が形成されている。絶縁層5は、発光エリア3のパターンを形成するとともに、透明導電膜による陽極2のパターンニング時に生じる透孔4のエッジ部分4aの微小な突起を覆い、このエッジ部分4aでの電界集中による一対の電極間のショートを防止している。

【0005】 図2に示すように、陽極2の上には有機化合物材料の薄膜による有機層6が積層されている。図2

における有機層6は、正孔注入層としての銅フタロニオン（CuPc）有機膜6aと、正孔輸送層としてのBis（N-（1-naphyl）-N-phenyl）benzidine（ $\alpha$ -NPD）有機膜6bと、発光層兼電子輸送層としてのアルミキノリン（Alq3）有機膜6cとの3層構造からなり、発光エリア3を形成している。

【0006】 図2に示すように、有機層6（Alq3有機膜6c）の上にはAl：Li合金の金属薄膜からなる陰極7が形成されている。素子基板1の外周縁部分には封止部材としての封止基板8が接着剤により固着され、パッケージ9が構成される。パッケージ9の内部には、ドライエア又は不活性ガス（例えばドライ窒素）が封じ込まれている。

【0007】 上記有機EL素子では、陽極2と陰極7との間に電圧を印加して定電流を流すと、有機層6に対し、陽極2から正孔が、陰極7から電子がそれぞれ注入される。そして、注入された正孔と電子が有機層6で再結合して励起子を生成し、この励起子が失活する際の光の放出により所望の表示がなされる。その際の発光は、透明導電膜による陽極2を介して素子基板1側から観測される。

【0008】 ところで、上記のように構成される有機EL素子の最大の課題は耐久性の改善であり、その中でもダークスポットと呼ばれる非発光部の発生と成長が最も大きな問題となっている。ダークスポットが発生する原因としては、水分及び酸素の影響が最も大きいとされ、特に水分は極めて微量でも大きな影響を及ぼすものとされている。

【0009】 そこで、使用する有機材料の精製、成膜時の真空の質、素子の封止など、水分を極力取り除く工夫を実施し、ドライプロセスで製作している。しかしながら、それでも十分な特性が得られていないのが現状である。実際に市販されているELディスプレイにおいても、初期段階で20 $\mu$ m前後のダークスポットが多数発生しており、対策の困難さが伺える。

【0010】 このように、有機EL素子の最大の課題はダークスポットを根絶して長寿命化を図ることであり、素子を封止することで大幅に改善できる。加えて、封止基板に別途捕水材を固定することにより改善が進んでいる。

【0011】 ところが、有機EL素子を表示デバイスとして実用化するためには、図2に示すように、陽極2と陰極7の絶縁性を高めるためにポリイミド膜等による絶縁層5を陽極2上に形成する必要がある。

【0012】 そこで、上述した図2に示す有機EL素子では、封止基板8で露出70 $\mu$ m程度のドライ窒素を紫外線硬化樹脂等の接着剤を用いて内部に封じ込み、ダークスポットの成長を抑えるための封止構造を採用している。この構造により、ドライ状態を保ち、ダークスポットの発生、成長を抑えている。

## 【0013】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、図2に示す構成の有機EL素子を連続点灯させると、発光エリア3（有機層6）と絶縁層5との境界から非発光部分が現れ、発光エリア3の中央へ向かい広がるといった問題が生じる。この原因は、パッケージ9内の絶縁層5をなすポリイミド膜中に存在する微量の水分と考えられ、密着した有機層6に水分が触れて非発光部を誘発させたと推測される。

【0014】また、上記のように発光エリア3に非発光部分が現れると、その発光エリア3の発光面積が小さくなり、電流密度が大きくなる。その結果、その発光エリア3に印加される電圧が上昇して過電流が流れ、素子を損傷させる恐れがあった。

【0015】そこで、本発明は、上記問題点を鑑みてなされたものであり、発光エリアの非発光部の発生を抑え、発光エリアを長時間にわたって初期と同様の状態に保つことができる有機EL素子を提供することを目的としている。

## 【0016】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、請求項1の発明に係る有機EL素子は、素子基板と、発光エリアのパターンを形成するように透孔を有して前記素子基板の上に形成された導電膜からなる第1の電極と、前記透孔を埋めて該透孔のエッジ部分を覆うように前記第1の電極の上に形成された絶縁層と、前記第1の電極及び前記絶縁層の上に形成された発光層を含む有機層と、前記有機層の上に形成された導電膜からなる第2の電極と、内部がドライ雰囲気に保たれた状態で前記素子基板の外周部分に封着される封止部材とを備えた有機EL素子において、前記絶縁層中に捕水材を含有したことを特徴としている。

【0017】請求項2の発明は、請求項1の有機EL素子において、前記2つの電極の少なくとも一方が透明性を有する導電膜からなることを特徴としている。

【0018】請求項3の発明は、請求項1又は2の有機EL素子において、前記絶縁層は、捕水材を混合・分散させたポリイミド溶液を熱処理したポリイミド膜からなることを特徴としている。

【0019】請求項4の発明は、請求項1～3のいずれかの有機EL素子において、前記捕水材は、酸化カルシウム又は酸化バリウムからなることを特徴としている。

【0020】本発明によれば、絶縁層を構成するポリイミド膜中に混合・分散された酸化カルシウム $\text{CaO}$ （又は酸化バリウム $\text{BaO}$ ）からなる捕水材が、水と化学反応を起こして水酸化カルシウム $\text{Ca}(\text{OH})_2$ （又は水酸化バリウム $\text{Ba}(\text{OH})_2$ ）を生成し、水分を吸着保持する。

## 【0021】

【発明の実施の形態】図1は本発明による有機EL素子

の実施の形態を示す側断面図である。なお、図2の有機EL素子と同一の構成要素には同一番号を付して説明する。

【0022】図1に示すように、有機EL素子は、絶縁性及び透光性を有するガラス基板からなる素子基板1を基部としている。素子基板1の上には、透明性を有する導電材料として、ITO（Indium Tin Oxide）による透明導電膜が形成されている。透明導電膜は、例えば真空蒸着法、スパッタ法等のPVD（Physical Vapor Deposition）法により成膜され、電極としての陽極2を構成している。透明導電膜による陽極2は、発光エリア3のパターンを形成するように透孔4を有して素子基板1の上に形成される。陽極2の一部は、素子基板1の端部まで引き出されて図示の電源回路に接続される。

【0023】透明導電膜からなる陽極2の上には、透孔4を埋めて透孔4のエッジ部分4aを覆うようにして捕水材16を含有した絶縁層15が形成されている。絶縁層15は、発光エリア3のパターンを形成するとともに、透明導電膜による陽極2のバターンニング時に生じる透孔4のエッジ部分4aの微小な突起を覆い、エッジ部分4aでの電界集中によるアーチ電極間（陽極2と陰極7の間）のショートを防止している。

【0024】捕水材16は、粒径が数 $\mu\text{m}$ 以下（好ましくはナノサイズ）の超微粒子からなる非導電性物質、例えば酸化カルシウム $\text{CaO}$ 、酸化バリウム $\text{BaO}$ ）で構成される。捕水材16は、化学吸着により水分を吸着した状態を保持している。

【0025】更に説明すると、捕水材16が酸化カルシウム $\text{CaO}$ で構成される場合は、 $\text{CaO}$ が水と化学反応して水酸化カルシウム $\text{Ca}(\text{OH})_2$ を生成し、この生成された水酸化カルシウム $\text{Ca}(\text{OH})_2$ を保持して水分を吸着する。同様に、捕水材16が酸化バリウム $\text{BaO}$ で構成される場合にも、酸化バリウム $\text{BaO}$ が水と化学反応して生成される水酸化バリウム $\text{Ba}(\text{OH})_2$ を保持して水分を吸着する。

【0026】上記捕水材16を含有した絶縁層15は、捕水材16が混合・分散されたポリイミド溶液から形成される。具体的に、ポリイミド溶液は、露点 $-70^\circ\text{C}$ 以下のドライ窒素に置換したグローブボックス中で、捕水材16として上記の酸化カルシウム粉末（又は酸化バリウム粉末）を1.00mlの感光性ポリイミド溶液（例えば、商品名：ハイマルG-7650E、旭化成株式会社製）に入れ、攪拌して分散させることにより作製される。このポリイミド溶液が作製されたグローブボックスは、真空度1Torr以下にされて脱気が行われる。

【0027】図1に示すように、陽極2の上には有機化合物材料の薄膜による有機層6が積層されている。図1における有機層6は、PVD法により陽極2上に数10nmの膜厚で成膜された正孔注入層としてのCuPc有機膜6aと、CuPc有機膜6aの上に数10nmの膜

厚で成膜された正孔輸送層としての $\alpha$ -NPD有機膜6bと、 $\alpha$ -NPD有機膜6bの上に数10nmの膜厚で成膜された発光層兼電子輸送層としてのAlq<sub>3</sub>有機膜6cとの3層構造からなり、所定パターン形状の発光エリア3を形成している。

【0028】図1に示すように、有機層6（Alq<sub>3</sub>有機膜6c）の上には金属薄膜が形成されている。金属薄膜は、例えばAl、Li、Mg、Ag、In等の仕事関数の小さい金属材料単体やMg:Ag、Al:Li等の仕事関数の小さい合金からなる。金属薄膜は、PVD法により例えば数10～数100nmの膜厚で成膜され、電極としての陰極7を構成している。陰極7の一部は、素子基板1の端部まで引き出されて不図示の電源回路に接続される。

【0029】素子基板1の外周縁部分には、封止部材としての封止基板8が例えば紫外線硬化樹脂等の接着剤により固着されている。これにより、素子基板1上に形成された素子を保護するパッケージ9が構成される。パッケージ9の内部には、例えば露点-70℃程度の窒素、ヘリウム、ネオン、アルゴン等の不活性ガスやドライエア等の活性の低いガスが封入ガスGとして封じ込まれている。

【0030】次に、上記構成による有機EL素子の製造方法について説明する。まず、素子基板1の上に透明導電膜（ITO）を例えばスパッタ法により150nm程度の膜厚で成膜して陽極2を積層形成する。この透明導電膜は、所定パターンによる発光エリア3を形成するように透孔4を有して素子基板2の上に成膜される。

【0031】次に、透孔4を有する所定パターン形状の陽極2を形成した素子基板1に対し、捕水材16を混合・分散したポリイミド溶液をスピンコートし、プリヘック、露光、現像、ポストヘックの順で行う。これにより、陽極2の上には捕水材16を含有した所望のポリイミドパターンが形成される。

【0032】なお、上記ポリイミドパターンは、スピンコート法、他、ディッピング法、ドクターレード法、アプリケーション法、転写法等の方法を用いて形成することもできる。

【0033】続いて、素子基板1を大気又は窒素雰囲気中で例えば300～400℃で1時間の熱処理を行う。これにより、素子基板1の陽極2の上には、透孔4を孔埋めし、かつ透孔4のエッジ部分4μを覆うようにして、捕水材16を含有したポリイミド膜による膜厚1～20μm程度（好ましくは、1～10μm）の絶縁層15が形成される。

【0034】次に、陽極2及び絶縁層15が積層形成された素子基板1を洗浄（例えばUVオゾン洗浄）する。洗浄された素子基板1に対し、蒸着装置内で抵抗加熱により有機層6、陰極7を順次蒸着して成膜する。そして、露点-70℃以下のドライ窒素で蒸着装置をバージ

し、同様のドライ窒素で置換したグローブボックスに大気に曝すことにより素子基板1を移動させる。

【0035】ここで、上記工程とは別工程で、予め洗浄して水分を除去した封止基板8の外周縁部分に接着剤としての紫外線硬化樹脂を塗布しておく。そして、接着剤の塗布された封止基板8を素子基板1の外周縁部分に対向して張り付け、紫外線で硬化して素子基板1と封止基板8の間を固定し、内部にガスG（ドライ窒素）が封入されたパッケージ9を構成する。これにより、図1の構成による有機EL素子が完成する。

【0036】上記のように製造された有機EL素子の陽極2を正極、陰極7を負極に接続し、直流電圧を印加して電流密度10mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で連続点灯させた。その結果、2000時間経過後の発光状態は初期と何ら変わらず、発光エリア3（有機層6）と絶縁層15の境界からダークスポットによる非発光部は現れることはなかった。

【0037】これに対し、上記と同一条件で図2に示す構成の有機EL素子を連続点灯した場合には、300～500時間が経過した所で発光エリアにダークスポットによる非発光部が現れた。

【0038】このように、上記実施の形態によれば、捕水材16を混合・分散したポリイミド溶液を熱処理したポリイミド膜により絶縁層15が形成され、絶縁層15中の捕水材16が水と化学反応を起こして水分を吸着保持するので、絶縁層15と発光エリア3（有機層6）の境界からの非発光部の発生を抑えることができる。

【0039】その結果、発光エリア3の形状は、長時間にわたって初期と同様の状態を保つことができる。そして、発光エリア3の発光面積の減少が始まらないため、発光エリア3の発光面積の減少による電流密度の増大に伴う電圧上昇が抑えられ、無駄な電力消費を減少させることができる。

【0040】ところで、図示の例では、有機層6としてCuPc有機膜6a、 $\alpha$ -NPD有機膜6b、Alq<sub>3</sub>有機膜6cの3層構造のものについて説明したが、発光層と電荷輸送層（正孔輸送層、正孔注入・輸送層、電子注入層、電子注入・輸送層等）との組合せで構成することができる。

【0041】具体的には、発光層1層のみ、発光層と正孔輸送層の2層、発光層と電子注入層の2層、正孔輸送層と発光層と電子注入層の3層等で構成される。発光層の発光材料としては、発光層そのものを発光させる場合には、例えばアルミキナリン（Alq<sub>3</sub>）やジスチレンアリーレン系化合物等が使用される。発光層に別の発光材料（ドーパント）を微量ドーピングすることで発光させる場合には、ドーパントとしてキノクリトン（Qcl）やレーザ用の色素等が使用される。

【0042】また、電子注入層としては、電子の注入をしやすいため、例えばLi、Na、Mg、Ca等の仕

事関数の小さい金属材料単体、又は例えばAl:Li、Mg:In、Mg:Ag等の仕事関数の小さい合金が使用される。

【0043】上記実施の形態では、素子基板1の上に透孔4を有する透明導電膜による陽極2を形成した構成としたが、透明導電膜からなる陽極2と金属薄膜からなる陰極7とを逆転させた構成としてもよい。その場合、陽極2側から発光が観測されるため、素子基板1は必ずしも透光性を有する必要はなく、絶縁性を有するガラス基板で構成することができる。

【0044】また、一对の電極をなす陽極2と陰極7は、少なくとも一方が透明性を有する導電材料（透明電極）で形成されていればよい。その際、両方の電極が透明性を有する導電材料の場合には、一方の電極に仕事関数の大きい透明性を有する導電材料（ITO）を使用し、他方の電極に仕事関数の小さい透明性を有する導電材料を使用する。

【0045】

【発明の効果】以上の説明で明らかなように、本発明に

よれば、絶縁層が捕水材を含有して形成され、絶縁層中の捕水材が水と化学反応を起こして水分を吸着保持するので、絶縁層と発光エリアの境界からの非発光部の発生を抑えることができる。

【0046】その結果、発光エリアの形状は、長時間にわたり初期と同様の状態を保つことができる。そして、発光エリアの発光面積の減少が殆どないため、発光エリアの発光面積の減少による電流密度の増大に伴う電圧上昇が抑えられ、無駄な電力消費を減少させることができる。

【図面の簡単な説明】

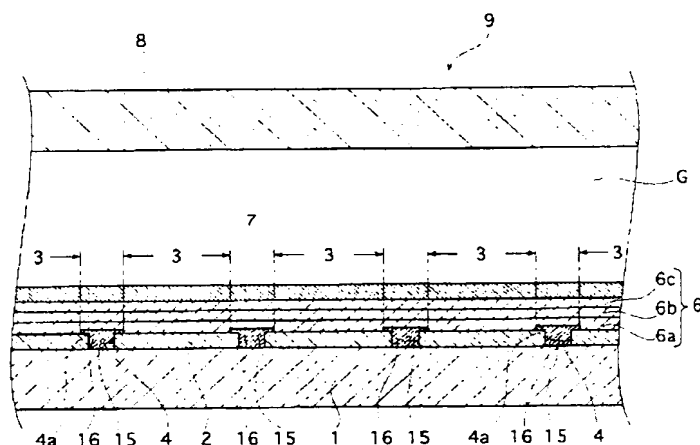
【図1】本発明による有機EL素子の実施の形態を示す側断面図

【図2】一般的な有機EL素子の構成を示す側断面図

【符号の説明】

1…素子基板、2…陽極、3…発光エリア、4…透孔、4a…エッジ部分、5…絶縁層、6…有機層、7…陰極、8…封止基板、G…封入ガス。

【図1】





【図2】

